ベトナム南部の土壌及び底質中のダイオキシン

—特に高塩素化ダイオキシンについて—

橋本 俊次

株式会社 環境研究センター

(〒305 つくば市妻木210-4)

脇本 忠明, 立川 涼

愛媛大学農学部

(〒790 松山市樽味3-5-7)

[平成6年7月6日受理]

Dioxins in Soils and Sediments of South Vietnam, with Highly Chlorinated Dioxins

Shunji HASHIMOTO

Environmental Research Center

(210-4, Saiki, Tsukuba 305)

Tadaaki WAKIMOTO and Ryo TATSUKAWA

Department of Life Environment Conservation,

Ehime University

(3-5-7, Tarumi, Matsuyama 790)

[Received July, 6, 1994]

Summary

The past pollution by dioxins in south Vietnam was studied by analyzing soil and sediment core samples. TCDD was not found from these samples in spite of the large use of defoliant during the Vietnam War. On the other hand, highly chlorinated dioxins were detected from almost all samples analyzed. The levels ranged from 0.069 to 1.1 ng/g dry weight basis, and their isomer compositions which contained about 80%, 15% and 5% respectively for OctaCDD, HeptaCDDs and HexaCDDs. Isomer patterns were very similar each other. The isomer composition is similar to that found in deep core layer of sediment collected from Japanese coastal areas suggesting the presence of "natural dioxins".

Key words: dioxins, Vietnam, soil, sediment, natural formation

1. はじめに

“枯葉作戦”によって、1962～1971年の10年間にベトナムの大地には大量の除草剤が散布された。この作戦に使用された除草剤の量は、ストックホルム国際平和研究所 (SIPRI) の試算によると、総量7,200万L、有効成分55,000tにも及ぶ¹⁾。枯葉剤として使用された2,4-D, 2,4,5-Tには、不純物として2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin (TCDD)が含まれていたことが知られており^{2,3)}、ベトナムにおける1975年以降の死産率、奇形発生率の増加⁴⁾は、これらのTCDDに起因すると考えられている。

ベトナムにおける枯葉剤の影響、特にTCDDによる生態系及び人体への影響を評価する為には、種々の情報が必要となる。とりわけ土壌及び底質は、汚染の実態を把握する上で基礎的な情報を提供してくれる。また、土壌及び底質を垂直方向に層位別に分析することによって、過去からの汚染を復元することも可能である。このような環境試料の分析例は、人体中のダイオキシンの調査⁵⁻⁷⁾と比較して少ない。

以前我々は、ベトナム各地の土壌試料を採取分析することによって、現在のベトナムのダイオキシン汚染の実態を調査した⁸⁾。その結果、部分的ながらTCDDを検出し、ベトナム戦争から20年を経た現在もなお、TCDDが残留していることを確認した。また、同調査でTCDD以外のダイオキシン類も検出し、他の汚染源の存在を示唆した。

今回我々は、同調査で得られた試料のうち、層位別土壌試料及び、底質コアを分析することにより、ベトナムにおける過去のダイオキシン汚染の復元を試みた。

2. 試料と方法

2.1 試料

1989年1月29日から2月9日の調査で、ベトナム南部のDoc Binh Kieu及びTam Nongで採取した層位別土壌試料(深さ40cm, 5cm×8セグメント)と、6月13日から20日の調査で得たCa Mau (Bai Bung 岬)のSon Cua Lon運河の底質コア(直径5.5cm, 深さ50cm, 5cm×10セグメント)を分析に供した。Fig. 1に調査地点を示す。Doc Binh Kieuの試料は休耕地から採取し、Tam Nongの試料は人手の入っていないメコン川支流の氾濫原から採取した。

試料は採取後、ポリエチレン製袋に密封し研究室まで運んだ。試料は風乾後、磁製乳鉢ですりつぶし、32 meshのふるいを通した。

2.2 分析操作

分析法ならびに測定法は既報に準じた⁹⁾。約50g(乾重)

の試料をイソプロピルアルコールで24時間、次いでジクロロメタンで24時間ソックスレー抽出し、両液を合せ濃縮し、ヘキサンに転溶した。これを濃硫酸で処理した後、シリカゲル、中性アルミナ、活性炭、最後にHPLC (LC-4A, 島津, カラム; Zolbax-SIL, 250mm, 内径4.6mm, 島津)によってクリンナップを施した。内部標準試料として1.0ngの¹³C₁₂-TCDDをヘキサン転溶時に添加した。回収率は、平均58.3% (SD=17.1%, n=26)であった。

2.3 測定及び定量

測定は、HP 5890 GC / HP 5970 MSD (Hewlett Packard)で行った。使用したGCカラムは、SP-2331 (30m, 内径0.25mm, 膜厚0.25 μ m, Supelco)あるいはultra-1 (30m, 内径0.25mm, 膜厚0.25 μ m, Hewlett Packard)であった。

S/N比が2以上のピークを内部標準法で定量した。同定は、GC保持時間とMSにおけるm/z = M⁺とm/z = (M+2)⁺のイオン強度比を、標準試料及びフライアッシュ抽出液の測定によって得られたものと比較することによって行った。

今回の検出下限は、Tetra～HeptaCDDs/CDFsは0.001～0.01ng/g dry, OctaCDD/CDFは0.01～0.050ng/g dryであった。

3. 結果と考察

3.1 概要

分析結果の全てをTable 1～5に示す。Tam Nongを除く全ての試料からダイオキシンを検出したが、類縁化合物であるジベンゾフランは検出できなかった。Tam Nongの層位別土壌試料からは、深さ30～40cmの層から0.069ng/g dryのOctaCDD (OCDD)を検出したのみであった。ほとんどの試料において、OCDDは検出されたダイオキシンの大半を占めており、次いでHeptaCDDs, HexaCDDsの順に多く検出した。しかしながら、どの試料からもTCDDは検出できなかった。これは、ベトナムの他の河川底質を分析しているA. Schecterら(1989)¹⁰⁾の報告とほぼ一致している(ただし、A. SchecterらはPCDFsも検出している)。

Doc Binh Kieu, Tam Nongには、過去にどれくらいの枯葉剤が散布されたかは明らかではない。しかし、全米科学アカデミーの報告¹¹⁾によれば、Ca MauのNam Can集落付近には1967～1970年に大量の除草剤が散布されており、現地住民の証言はこれを裏付けている。それにもかかわらず、そこから採取した3本の底質コアからTCDDは発見できなかった。以前の研究で我々は、現在のベトナム土壌に残留するTCDD濃度を0.025ng/gと推定しており、今回の調査地点でも同等のレベルの残留があれば、TCDDは十分検出可能なはずである。実際、他

Fig. 1 Location map of soil and sediment sampling points from south of Vietnam.

Table 1 Concentrations (ng/g dry) of PCDDs and PCDFs in soil core from Doc Binh Kieu, south of Vietnam.

isomer	depth(cm)					
	0-5	5-10	10-15	15-20	20-25	25-30
TetraCDDs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDDs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
124679-/124689-/123468-	0.010	0.018	0.013	0.013	0.014	0.014
HexaCDDs	0.010	0.018	0.013	0.013	0.014	0.014
1234679-	0.028	0.033	0.025	0.020	0.024	0.022
1234678-	0.018	0.020	0.012	0.006	0.009	0.005
HeptaCDDs	0.046	0.053	0.037	0.026	0.033	0.027
OctaCDD	0.26	0.38	0.23	0.20	0.18	0.19
Total PCDDs	0.316	0.451	0.280	0.239	0.227	0.231
TetraCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
HexaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
HeptaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
OctaCDF	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Total PCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd

nd : Not detected (detection limit = 0.001-0.010 ng/g dry).

Table 2 Concentrations (ng/g dry) of PCDDs and PCDFs in soil core from Tam Nong, south of Vietnam.

isomer	depth(cm)			
	0-5	10-15	20-25	35-40
TetraCDDs	nd	nd	nd	nd
PentaCDDs	nd	nd	nd	nd
HexaCDDs	nd	nd	nd	nd
HeptaCDDs	nd	nd	nd	nd
OctaCDD	nd	nd	nd	0.069
Total PCDDs	nd	nd	nd	0.069
TetraCDFs	nd	nd	nd	nd
PentaCDFs	nd	nd	nd	nd
HexaCDFs	nd	nd	nd	nd
HeptaCDFs	nd	nd	nd	nd
OctaCDF	nd	nd	nd	nd
Total PCDFs	nd	nd	nd	nd

nd : Not detected (detection limit = 0.001-0.010 ng/g dry).

Table 3 Concentrations (ng/g dry) of PCDDs and PCDFs in sediment core from Ca Mau (NO.1), south of Vietnam.

isomer	depth(cm)				
	0-5	10-15	20-25	30-35	40-45
TetraCDDs	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDDs	nd	nd	nd	nd	nd
124679-/124689-/123468-	nd	0.043	0.035	nd	nd
HexaCDDs	nd	0.043	0.035	nd	nd
1234679-	0.075	0.064	0.056	0.029	0.081
1234678-	0.036	0.020	0.027	0.014	0.023
HeptaCDDs	0.111	0.084	0.083	0.043	0.104
OctaCDD	0.59	0.31	0.57	0.21	0.61
Total PCDDs	0.701	0.437	0.688	0.253	0.714
TetraCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
HexaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
HeptaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
OctaCDF	nd	nd	nd	nd	nd
Total PCDFs	nd	nd	nd	nd	nd

nd : Not detected (detection limit = 0.010-0.030 ng/g dry).

Table 4 Concentrations (ng/g dry) of PCDDs and PCDFs in sediment core from Ca Mau (NO.2), south of Vietnam.

isomer	depth(cm)					
	0-5	10-15	20-25	30-35	40-45	50-53
TetraCDDs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDDs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
124679-/124689-/123468-	nd	0.040	0.045	0.033	0.046	0.085
HexaCDDs	nd	0.040	0.045	0.033	0.046	0.085
1234679-	nd	0.051	0.050	0.051	0.091	0.12
1234678-	nd	0.027	0.026	0.012	0.038	0.034
HeptaCDDs	nd	0.078	0.076	0.063	0.129	0.154
OctaCDD	0.43	0.50	0.33	0.32	0.80	0.90
Total PCDDs	0.430	0.618	0.451	0.416	0.975	1.139
TetraCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
HexaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
HeptaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd
OctaCDF	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Total PCDFs	nd	nd	nd	nd	nd	nd

nd : Not detected (detection limit = 0.010-0.050 ng/g dry).

Table 5 Concentrations (ng/g dry) of PCDDs and PCDFs in sediment core from Ca Mau (NO.3), south of Vietnam.

isomer	depth(cm)				
	0-5	5-10	10-15	15-20	20-25
TetraCDDs	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDDs	nd	nd	nd	nd	nd
124679-/124689-/123468-	nd	0.060	0.044	0.053	nd
HexaCDDs	nd	0.060	0.044	0.053	nd
1234679-	0.055	0.074	0.056	0.048	0.045
1234678-	nd	0.010	0.027	0.013	0.023
HeptaCDDs	0.055	0.084	0.083	0.061	0.068
OctaCDD	0.33	0.66	0.57	0.31	0.37
Total PCDDs	0.385	0.804	0.697	0.424	0.438
TetraCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
PentaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
HexaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
HeptaCDFs	nd	nd	nd	nd	nd
OctaCDF	nd	nd	nd	nd	nd
Total PCDFs	nd	nd	nd	nd	nd

nd : Not detected (detection limit = 0.010-0.050 ng/g dry).

の地域からは0.0013～0.029ng/g dryのTCDDを検出している⁸⁾。つまり、この地域のTCDDは、戦後20年の間に何らかの作用を受け消失したものと推定できる。例えば、熱帯の雨季の激しい降雨、あるいは洪水によって土壌ごと流されてしまったのかも知れないし、あるいは、A. L. Youngら(1983)¹²⁾が報告しているように、TCDDは強い日射によって分解してしまったのかも知れない。

何れにせよ、かつて大量に枯葉剤が散布されたのは事実であり、今回の調査結果から、ベトナムにおけるダイオキシン汚染問題は解決されたという結論を導き出すのは尚早である。もし、TCDDが河川の氾濫などで汚染土壌ごと流亡したのならば、現在の汚染域は河口沿岸域に移動している可能性が高いし、前述のとおり、他の地点では陸上でもTCDDの残留が確認されている。さらに多地点の環境調査を行うことは、ベトナムにおける枯葉剤の影響を研究する上で重要な情報を提供してくれるに違いない。

3. 2 高塩素化ダイオキシンについて

今回の調査で特筆すべきことは、OCDDなど高塩素化ダイオキシンが全ての地点から発見されたことである。そのレベルは平均0.42ng/g dry (0.21～0.90ng/g dry)

で、他国の底質及び土壌中濃度¹³⁻¹⁵⁾に比べ高くはないが、十分に測定可能な濃度であった。しかもFig. 2に示すように、その異性体組成は深度(垂直)方向にはほぼ一様で、また、何れの地点においても類似している。検出されたダイオキシンの約80%がOCDDで、約15%がHeptaCDD、約5%がHexaCDDという組成が図から見てとれる。特にDoc Binh Kieu土壌中のダイオキシン組成は極めて均一である。確かにこの試料採取地点は休耕地であるため、かつて耕作によって土壌が均一に混合されている可能性は否定できない。また、同様にCa Mauの底質コアにもダイオキシン組成の深度方向への均一性が観察できるが、この場合も、底質の堆積速度などの情報が無いため、ここで行う考察は推論の域を出ないかも知れない。しかしながら、次のような仮定を置くことは可能であり、それほど非現実的とは言えない。つまり、これらの底質試料は一度に堆積したものではなく、堆積後に(深度50cmに及ぶ)大きな攪拌も起きておらず、各深度の試料がそれぞれの堆積当時の環境を反映するという通論を用いるのである。この仮定に基づけば、底質コア中の異性体組成から、過去から一定の割合でダイオキシンを放出し続ける汚染源の存在が示唆できる。

次にこのダイオキシンの起源について考える。最初に

Fig. 2 Vertical change in compositions of PCDD isomers in soil (Doc Binh Kieu) and sediment (Ca Mau No.1, No.2 and No.3) core samples from south of Vietnam.

疑われるのは、分析過程のコンタミネーションであろう。しかし、以前の報告⁹⁾のとおり、分析には二次汚染が起こらないように細心の注意を払っている（例えば、使用溶媒の蒸留精製、使用器具の洗浄、試薬及び器具のブランクチェックなど）。ブランク及びほとんどのTam Nong 土壌試料からダイオキシン類を検出できないことから、コンタミネーションでないことは明らかである。

二次汚染でない以上、枯葉剤にその起源を求めるのが最も自然なアプローチと思われる。ところが、枯葉剤の成分であった2,4-D, 2,4,5-T, ピクロラム, カコジル酸などの除草剤に、今回検出されたような高塩素化ダイオキシンが含まれていたという報告はない。それに加えて、TCDD などが環境中で高塩素化物に変化したとも考えがたい。なぜなら、一般にダイオキシン類の環境中での変化は分解あるいは低塩素化の方向に進むからである^{16,17)}。ただ、種々の物理化学定数（水溶解度、オクタノール-水分配係数、ヘンリー定数）から考えると、高塩素化物の方が低塩素化物より残留しやすい傾向にあるので^{18,19)}、もし枯葉剤に HeptaCDDs や OCDD も含まれていたならば、TCDD などの低塩素化物は消失し高塩素化物のみが残留したという仮説は成り立ったであろう。つまりこれらのことは、検出されたダイオキシンは枯葉剤に含まれていたものではないことを示しているようである。

OCDD などの高塩素化ダイオキシンを高濃度含有する除草剤として PCP が知られているが²⁰⁾、PCP は枯葉剤の成分ではないばかりか、調査地点付近では使用された歴史はないという（現地住民の証言より）。つまり、これらのダイオキシンは除草剤以外から供給されたと言えるであろう。

さらに興味深いことに、この検出された異性体の種類と組成は、以前の研究⁹⁾で日本沿岸の底質コアの深層部に確認したものと酷似している。比較のため、Fig. 3 に大阪湾柱状底質におけるダイオキシン異性体組成の垂直変化を示したグラフを掲載する。ベトナムの底質と日本の沿岸底質深部のダイオキシン組成の共通性は、両地域に同様な供給源が存在することを示しているようである。日本の沿岸底質深部に含まれるダイオキシンは、堆積年代から、人類による産業活動とは無縁のものであることが推定されており、今回、ベトナムの土壌及び底質から検出されたダイオキシンも、同じ機構によって生成したものである可能性が高い。確かに、今回の何れの試料採取地も都市あるいは集落から離れており、それらからの影響（例えば、ゴミ焼却によるガスや飛灰）は小さいと考えられる。

自然界でダイオキシンが生成する機構として最初に予想されるのは、野火や森林火災などの“燃焼”であろう。塩化ビニルや他の有機塩素を多く含む都市ゴミの燃焼では、活性塩素などの発生によってダイオキシン類が生成することが知られている^{21,22)}。しかし、有機塩素をほとんど含まないはずの自然燃焼において、同様な機構でダイオキシンが生じるとは疑問である。たとえ天然燃焼によって反応性の高い塩素が発生したところで、まだ問題が残っている。それは、燃焼過程でダイオキシンが生成する場合、必ずその類縁化合物であるジベンゾフランもダイオキシンとほぼ同じ割合で生成し、しかも全ての異性体を含み、同族体組成はむしろ低～中塩素化物に偏る傾向にある^{23,24)}ことである。つまり、土壌及び底質試料はこの現象をそのまま反映する²⁵⁾はずなのだが、試料の示すダイオキシン組成はそれと全く異なってい

Fig. 3 Vertical change in compositions of PCDD isomers in sediment core samples from Osaka bay (Japan).

る。以上のことから、自然界には“燃焼”ではない別のダイオキシン生成機構が存在することも考えられる。その生成機構についてはさらに調査の必要がある。

4. おわりに

従来、人類がつくり出したと考えられていた有機塩素系化合物、中でも特に毒性の強いダイオキシン類が自然界で生成しているとは信じがたいことである。しかしながら、1990年に数地点の大型底質コアを用いて行われた日本における調査で発見された、有史以前から存在するダイオキシン、すなわち自然生成したであろうダイオキシンが、今回の研究で再確認された。しかも、約4,000kmも離れ、環境も大きく違う日本とベトナムの土壌及び底質から発見されたそれらが、非常に良く似た異性体組成をもつことは、ダイオキシンの自然生成機構が広域にわたって存在していることを示唆している。

しかし、注意しなければならないことは、自然生成しているであろうダイオキシン類のほとんどは毒性の低いOCDDであり、また他の異性体においても2,3,7,8位置換体の割合は小さいのに対し、人類の産業活動に伴って発生するそれは種類が多く複雑で、毒性の極めて高いTCDDを含むうえに全体として高濃度という点である。自然生成するものがあつたとしても、そのことがダイオキシンに係る環境汚染対策の意義を減ずるものではない。重要なのは、自然生成するダイオキシンの存在を把握することであり、そのことが正確な環境汚染対策をする上で必要なものである。

要約

ベトナム南部から採取された層位別土壌試料及び底質コアを用い、ダイオキシンによる過去からの汚染の調査を行った。調査地点付近には、ベトナム戦争当時、大量の枯葉剤が散布されているにもかかわらず、そこから採取された試料からは、枯葉剤の不純物であるTCDDは検出できなかった。一方、ほとんどの試料からOCDDなどの高塩素化ダイオキシンを検出した。検出した濃度は0.069~1.1ng/g dryで、そのうち約80%がOCDD、約15%がHeptaCDDs、約5%がHexaCDDsであり、この組成は全試料で確認された。今回検出されたこれらのダイオキシン類は、周囲の状況などから、自然生成したものであることが類推された。しかも、以前我々が調査した日本沿岸底質深層部から発見したものと全く同じ組成をもつことが分かり、自然生成するダイオキシンの存在が示唆された。

文 献

- 1) SIPRI : Herbicides in war. pp 3-24, "The long term ecological and human consequences" Edited by

Westing, A. H., Taylor and Francis, London and Philadelphia (1984)

- 2) Fishbein, L., : Mutagens and potential mutagens in the biosphere; I. DDT and its metabolites, polychlorinated biphenyls, Chlorodioxins, polycyclic aromatic hydrocarbons, haloethers. *The Science of the Total Environment*, **4**, 305 (1973)
- 3) Helling, C. S., Isensee, A. R., Woolson, E. A., Ensor, P. D., Jones, G. E., Plimmer, J. R., and Kearney, P. C., : Chlorodioxins in pesticides, soils and plants. *J. Environ. Quality*, **2**, 171-178 (1973)
- 4) Le Diem Huong, Nguyen Thi Ngoc Phuong, Tran Thi Thuy and Nguyen Thi Kim Hoan : An estimate of the incidence of birth defects, hydatidiform mole and fetal death in utero between 1952 and 1985 at the obstetrical and gynecological hospital of Ho Chi Minh city, republic of Vietnam. *Chemosphere*, **18**, 805-810 (1989)
- 5) Schecter, A., Früst, P., Ryan, J. J., Früst, C., Meemken, H.-A., Groebel, W., Constable, J. D., and Dan Vu : Polychlorinated dioxin and dibenzofuran levels from human milk from several locations in the United States, Germany and Vietnam. *Chemosphere*, **19**, 979-984 (1989)
- 6) Schecter, A., Dan Vu, Tong, H. Y., Monson, S. J., Gross, M. L., and Constable, J. D., : Levels of 2,3,7,8-TCDD and 2,3,7,8-TCDF in human adipose tissue from hospitalized persons in the north and south of Vietnam 1984-88. *Chemosphere*, **19**, 1001-1004 (1989)
- 7) Schecter A., Tong, H. Y., Monson, S. J., Gross, M. L., Raisanen, S., Karhunen, T., Östaerlund, E. K., Constable, J. D., Hoang Dinh Cau, Le Cao Dai, Hoang Tri Quynh, Ton Duc Lang, Nguyen Thi Ngoc, Phuong Phan Hoaug Phiet and Dan Vu : Human adipose tissue dioxin and dibenzofuran levels and "dioxin toxic equivalents" in patients from the north and south of Vietnam. *Chemosphere*, **20**, 943-950 (1990)
- 8) 松田宗明, 船野博之, 脇本忠明 : ベトナム自然土壌のPCDDs/PCDFs汚染, 第3回環境化学討論会要旨集, 418-419 (1994)
- 9) Hashimoto, S., Wakimoto, T., and Tatsukawa, R., : PCDDs in the sediments accumulated about 8120 years ago from Japanese coastal areas. *Chemosphere*, **21**, 825-835 (1990)
- 10) Schecter A., Eitzer, B. D., and Hites, R. A., : Chlorinated dioxin and dibenzofuran levels in sediments collected from rivers in Vietnam, 1984-6. *Chemos-*

- phere, **18**, 831-834 (1989)
- 11) 南ベトナムにおける枯葉剤散布の効果, 1965-1970, 全米科学アカデミー
 - 12) Young, A. L., : Long-term studies on the persistence and movement of TCDD in a natural ecosystem. *Environ. Sci. Reserch*, **26**, 173-190 (1983)
 - 13) Czuczwa, J. M., and Hites, R. A., : Airborn dioxins and dibenzofurans ; souece and fates. *Environ. Sci. Technol.*, **20**, 195-200 (1986)
 - 14) Hagenmaier, H., Brunner, R., Haag, R., and Berchtold, A., : PCDDs and PCDFs in sewage sluge, river and lake sediments from south west Germany. *Chemosphere*, **15**, 1421-1428 (1986)
 - 15) 脇本忠明：環境におけるダイオキシン汚染の現状, pp 121-134, 「ダイオキシン汚染問題解決への展望」, 工業技術会, 東京, (1992)
 - 16) Dobbs, A. J., and Grant, C., : Photolysis of highly chlorinated dibenzo-*p*-dioxins by sunlight. *Nature*, **278**, 163-165 (1979)
 - 17) Friesen, K. J., Muir, D. C. G., and Webster, G. R. B., : Evidence of sensitized photolysis of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins in natural waters under sunlight conditions. *Environ. Sci. Technol.*, **24**, 1739-1744 (1990)
 - 18) Shiu, W. Y., Doucett, D., Gobas, F. A. P. C., Andren, A., and Mackay, D., : Physical-chemical properties of chlorinated dibenzo-*p*-dioxins. *Environ. Sci. Technol.*, **22**, 651-658 (1988)
 - 19) Iwata, H., Tanabe, S., Sakai, N., Nishimura, A., and Tatsukawa, R., : Geographical distribution of persistent organochlorines in air, water and sediments from Asia and Oceania, and their implications for global redistribution from lower latitudes. *Environmental Pollution*, **85**, 15-33 (1994)
 - 20) Nilsson, C.-A., Norstrom, A., Andersson, K., and Rappe, C., : pp 313-324, "Pentachlorophenol" Edited by Rao, K. R., Plenum Press, New York and London (1978)
 - 21) Ballschmiter, K., Braunmiller, I., Niemczyk, R., and Swerev, M., : Reaction pathways for the formation of polychloro-dibenzodioxins (PCDD) and-dibenzofurans (PCDF) in combustion processes. ; II. chlorobenz enes and chlorophenols as precursors in the formation of polychloro- dibenzodioxins and -dibenzofurans in flame chemistry. *Chemosphere*, **17**, 995-1005 (1988)
 - 22) Dickson, L. C., Lenoir, D., and Hutzinger, O., : Quantitative comparison of de novo and precursor formation of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins under simulated municipal solid waste incinerator postcombustion conditions. *Environ. Sci. Technol.*, **26**, 1822-1828 (1992)
 - 23) Olie, K., Vermeulen, P. L., and Hutzinger, O., : Chlorodibenzo-*p*-dioxins and chlorodibenzofurans are trace components of fly ash and flue gas of some municipal incinerators in the Netherland. *Chemosphere*, **8**, 455-459 (1977)
 - 24) Wakimoto, T., and Tatsukawa, R., : Polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in fly ash and cinders collected from several municipal incinerators in Japan. *Environ. Health Perspect.*, **59**, 159-162(1985)
 - 25) 大崎靖彦, 松枝隆彦, 黒川陽一：土壤中のダイオキシン類の濃度レベル, 環境化学, **2**, 523-531 (1992)